

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-193952

(43)Date of publication of application : 10.07.2002

(51)Int.Cl.

C07D251/24
 C07D401/04
 C07D401/10
 C07D401/12
 C07D401/14
 C07D403/04
 C07D403/10
 C07D409/04
 C07D409/14
 C07D413/04
 C07D417/14
 C07D455/04
 C09K 11/06
 H05B 33/14

(21)Application number : 2000-392899

(71)Applicant : FUJI PHOTO FILM CO LTD

(22)Date of filing : 25.12.2000

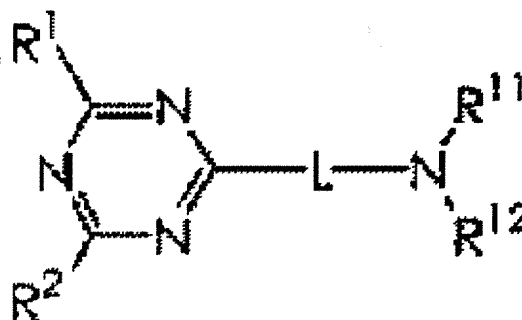
(72)Inventor : ISE TOSHIHIRO

(54) NEW NITROGEN-CONTAINING HETEROCYCLIC COMPOUND, MATERIAL FOR LIGHT EMITTING ELEMENT AND LIGHT EMITTING ELEMENTS USING THEM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide compounds generating blue fluorescent luminescence with strong fluorescence intensity, materials for light emitting elements using those compounds, and light emitting elements having excellent purity of color.

SOLUTION: The materials for light emitting elements are represented by formula (I) (wherein, R11 and R12 are each hydrogen, an aliphatic hydrocarbon group, aryl group or heterocyclic group, R1 and R2 are each hydrogen or a substituent free of amino, and L is a linkage group).



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

05.10.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2002-193952
(P2002-193952A)

(43) 公開日 平成14年7月10日 (2002.7.10)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 7 D 251/24		C 0 7 D 251/24	3 K 0 0 7
401/04		401/04	4 C 0 6 3
401/10		401/10	4 C 0 6 4
401/12		401/12	
401/14		401/14	

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 27 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2000-392899 (P2000-392899)

(22) 出願日 平成12年12月25日 (2000. 12. 25)

(71) 出願人 000005201

富士写真フイルム株式会社
神奈川県南足柄市中沼210番地

(72) 発明者 伊勢 俊大

神奈川県南足柄市中沼210番地 富士写真
フイルム株式会社内

(74) 代理人 100105647

弁理士 小栗 昌平 (外4名)

最終頁に続く

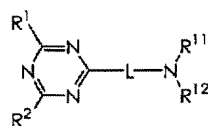
(54) 【発明の名称】 新規含窒素ヘテロ環化合物、発光素子材料およびそれらを使用した発光素子

(57) 【要約】

【課題】 蛍光強度の強い青色蛍光発光を示す化合物およびそれらの化合物を用いた発光素子材料、並びに色純度に優れた発光素子を提供する。

【解決手段】 下記一般式 (I) で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化1】

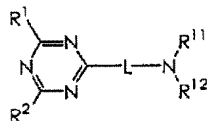


式中、R¹¹およびR¹²は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。R¹およびR²は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。Lは連結基を表す。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式（I）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

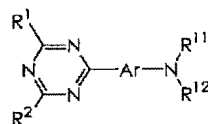
【化1】



（式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^1 および R^2 は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。 L は連結基を表す。）

【請求項2】 下記一般式（II）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

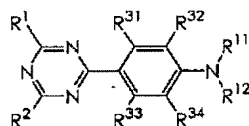
【化2】



（式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^1 および R^2 は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。 Ar はアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。）

【請求項3】 下記一般式（III）で表される化合物。

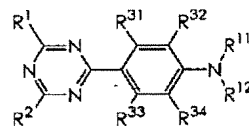
【化3】



（式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^1 、 R^2 はそれぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} および R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。）

【請求項4】 下記一般式（III）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化4】

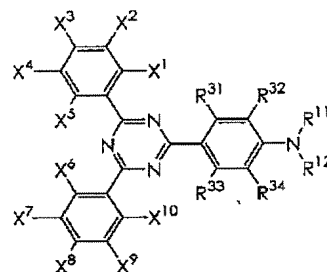


（式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^1 、 R^2 は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} および R^{34} は、それぞ

れ水素原子または置換基を表す。）

【請求項5】 下記一般式（IV）で表される化合物。

【化5】

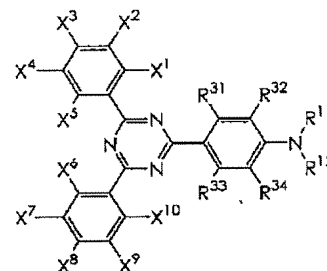


（式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。

R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 および X^{10} は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。）

【請求項6】 下記一般式（IV）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【化6】



（式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。

R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 および X^{10} は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。）

【請求項7】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、請求項1～6のいずれかに記載の一般式（I）～（IV）で表される化合物の少なくとも一種を、該有機化合物層の少なくとも一層以上に含有することを特徴とする発光素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、発光素子用材料、フィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、パルプ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光薬剤、光通信デバイス等として用いるに適した化合物および、それらを用いた発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】今日、多様な発光素子の研究開発が世界中で活発に行われているが、その中で有機電界発光（EL）素子は、超薄型・軽量性、高速応答性、広視野角性、低電圧駆動などの特長を有しており、有望な発光素子として注目されている。一般有機EL素子は、発光層及び該層を挟んだ一対の対向電極から構成されており、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が再結合し、生成した励起子からの発光を利用するものである。

【0003】現在、低電圧で高輝度に発光する有機EL素子はTangらにより示された積層構造を有するものである（アプライド フィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年）。この素子は電子輸送兼発光材料と正孔輸送材料を積層させることにより高輝度の緑色発光を得ており、6～7Vの直流電圧で、輝度は数千cd/m²まで達している。しかし、フルカラーディスプレイ、光源としての利用を考えると、実用上は三原色あるいは白色発光が必要であるが、上記素子では発光材料として8-キノリノールのアルミニウム錯体を用いており、発光色は緑色に限られるため、他の色に発光する素子の開発が望まれている。これまで緑色以外でも種々の発光材料が開発されているが、発光輝度、発光効率が低い、耐久性が低いなどの問題があった。

【0004】色純度が良好で発光効率が高い従来の素子は電荷輸送材料中に蛍光性色素を微量ドーピングしたものであり、製造上、素子特性の再現性に問題があることや、色素の耐久性が低いために長時間使用した場合に輝度の低下、色変化が起こるなどの問題があった。これを解決する手段として電荷輸送機能と発光機能を兼ね備えた材料の開発が望まれているが、これまで開発された材料では蛍光性色素を高濃度で用いると、会合等により輝度が低下する等の問題があった。

【0005】一方、有機発光素子において高輝度発光を実現しているものは有機物質を真空蒸着によって積層している素子であるが、製造工程の簡略化、加工性、大面積化等の観点から塗布方式による素子作製が望ましい。しかしながら、従来の塗布方式で作製した素子は発光輝度、発光効率の点において、蒸着方式で作製した素子より劣っており、高輝度、高効率発光化が大きな課題となっていた。

【0006】また、近年、フィルター用染料、色変換フィルター、写真感光材料染料、増感色素、パルプ染色用染料、レーザー色素、医療診断用蛍光薬剤、有機発光素子材料、光通信デバイス等に蛍光を有する物質が種々用いられ、その需要が高まっているが、青色の色純度が高く、且つ蛍光強度の強い化合物はあまりなく、新たな材料開発が望まれていた。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の第一の目的

は、蛍光強度の強い青色蛍光発光を示す化合物およびそれらの化合物を用いた発光素子材料、並びに色純度に優れた発光素子の提供である。本発明の第二の目的は、低電圧駆動で高輝度、高効率の発光が可能で、繰り返し使用時での安定性の優れた発光素子材料および発光素子の提供である。

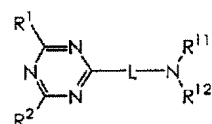
【0008】

【課題を解決するための手段】本課題は下記手段によって達成された。

【0009】[1] 下記一般式（I）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0010】

【化7】

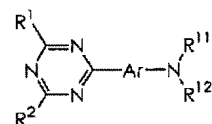


【0011】（式中、R¹¹およびR¹²は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。R¹およびR²は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。Lは連結基を表す。）

[2] 下記一般式（II）で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0012】

【化8】

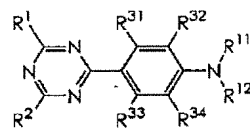


【0013】（式中、R¹¹およびR¹²は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。R¹およびR²は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。Arはアリーレン基または二価のヘテロ環基を表す。）

[3] 下記一般式（III）で表される化合物。

【0014】

【化9】



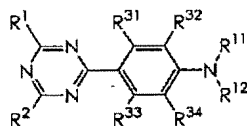
【0015】（式中、R¹¹およびR¹²は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。R¹、R²はそれぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。R³¹、R³²、R³³およびR³⁴は、それぞれ水素原子または置換基を表す。）

[4] 下記一般式（III）で表される化合物であるこ

とを特徴とする発光素子材料。

【0016】

【化10】

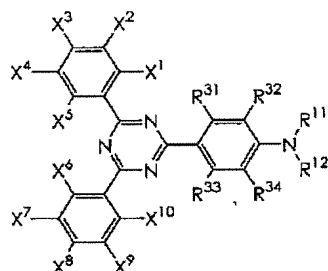


【0017】(式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^1 、 R^2 はそれぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} および R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。)

【5】 下記一般式(IV)で表される化合物。

【0018】

【化11】

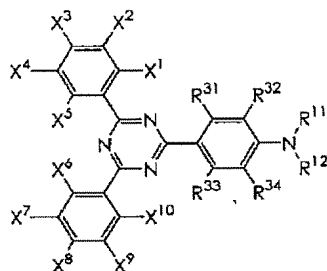


【0019】(式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 および X^{10} は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。)

【6】 下記一般式(IV)で表される化合物であることを特徴とする発光素子材料。

【0020】

【化12】



【0021】(式中、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 X^5 、 X^6 、 X^7 、 X^8 、 X^9 および X^{10} は、それぞれ水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。)

【7】 一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、【1】～【6】のいずれかに記載の一般式(Ⅰ)～(Ⅳ)で表される化合物の少なくとも一種を、該有機化合物層の少なくとも一層以上に含有することを特徴とする発光素子。

【0022】

【発明の実施の形態】以下に本発明の実施態様および実施方法を詳細に説明する。なお、本明細書において「～」はその前後に記載される数値をそれぞれ最小値および最大値として含む範囲を示す。

【0023】本発明の一般式(Ⅰ)で表される化合物について説明する。 R^{11} および R^{12} は、同一でも異なってもよく、水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、またはヘテロ環基を表す。また、可能な場合は R^{11} と R^{12} 、 R^{11} とL、 R^{12} とLはそれぞれ互いに連結して環を形成しても良い。

【0024】 R^{11} および R^{12} で表される脂肪族炭化水素基は、直鎖、分岐または環状のアルキル基(好ましくは炭素数1～30、より好ましくは炭素数1～20、更に好ましくは炭素数1～12であり、例えば、メチル、エチル、iso-プロピル、n-ブチル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、更に好ましくは炭素数2～12であり、例えば、ビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、更に好ましくは炭素数2～12であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、であり、好ましくはアルキル基、アルケニル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、アリル基、 R^{11} 、 R^{12} がLと結合して縮合環(例えばユロリジン環等)を形成したものである。

【0025】 R^{11} および R^{12} で表されるアリール基としては好ましくは炭素数6～30の単環または多環のアリール基(例えばフェニル、ナフチル、アントリル、フェナントリル、ピレニル等が挙げられる。))であり、より好ましくは炭素数6～20のフェニル基または炭素数10～24のナフチル基であり、更に好ましくは炭素数6～12のフェニル基または炭素数10～16のナフチル基、炭素数14～20のアントリル基、フェナントリル基である。

【0026】 R^{11} および R^{12} で表されるヘテロ環基は、N、OまたはS原子を少なくとも一つ含む3ないし10員環の飽和もしくは不飽和のヘテロ環基であり、これらは単環であっても良いし、更に他の環と縮合環を形成していても良い。ヘテロ環基として好ましくは、窒素原子、酸素原子、硫黄原子またはセレン原子を少なくとも

一つ含む3ないし10員環の芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくは5ないし6員環の芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくは、N原子またはS原子を含む5ないし6員環の芳香族ヘテロ環基である。

【0027】 R^{11} および R^{12} で表される上記ヘテロ環基におけるヘテロ環の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフエン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアズリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサズリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナズリン、シンノリン、アテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン等が挙げられる。ヘテロ環として好ましくは、チオフエン、トリアゾール、オキサゾール、ピリジン、ピリミジン、ピラジン、トリアジン、キノリンであり、より好ましくはチオフエン、ピリジン、ピリミジン、トリアジン、キノリンである。更に好ましくはチオフエンである。

【0028】 R^{11} 、 R^{12} で表される脂肪族炭化水素基、アリール基およびヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては、例えばアルキル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、*iso*-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。）、アリール基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、ナフチル等が挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数0～20、より好ましくは炭素数0～12、特に好ましくは炭素数0～6であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジフェニルアミノ、ジベンジルアミノ等が挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ等が挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6～20、より好ましくは炭素数6～16、特に好ま

しくは炭素数6～12であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフチルオキシ等が挙げられる。）、アシル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイル等が挙げられる。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニル等が挙げられる。）、アリールオキシカルボニル基（好ましくは炭素数7～20、より好ましくは炭素数7～16、特に好ましくは炭素数7～10であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。）、アシルオキシ基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシ等が挙げられる。）、アシルアミノ基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノ等が挙げられる。）、アルコキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノ等が挙げられる。）、アリールオキシカルボニルアミノ基（好ましくは炭素数7～20、より好ましくは炭素数7～16、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニルオキシカルボニルアミノ等が挙げられる。）、スルホニルアミノ基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノ等が挙げられる。）、スルファモイル基（好ましくは炭素数0～20、より好ましくは炭素数0～16、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイル等が挙げられる。）、カルバモイル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイル等が挙げられる。）、アルキルチオ基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオ等が挙げられる。）、アリールチオ基（好ましくは炭素数6～20、より好ましくは炭素数6～16、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチオ等が挙げられる。）、スルホニル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメシル、トシル等が挙げられる。）、スルフィニル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルフィニル、

ベンゼンスルフィニル等が挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイド等が挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミド等が挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子を含むものであり具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ペリジル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、アゼビニル等が挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリル等が挙げられる。)等が挙げられる。これらの置換基は更に置換されても良い。また置換基が二つ以上ある場合は、同一でも異なっても良い。また、可能な場合には互いに連結して環を形成していても良い。

【0029】 R^{11} 、 R^{12} として好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。電荷輸送材料兼発光材料(非ドーブ型)として用いる場合、 R^{11} 、 R^{12} として好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基(好ましくは炭素数6~30の単環または環のアリール基であり、より好ましくは炭素数6~20のフェニル基または炭素数10~24のナフチル基であり、更に好ましくは炭素数6~12のフェニル基または炭素数10~16のナフチル基、炭素数14~20のアントリル基、フェナントリル基である。)であり、ドーブ型発光材料として用いる場合、 R^{11} 、 R^{12} として好ましくは水素原子、アルキル基、 L と連結して環を形成するアルキレン基であり、より好ましくはアルキル基、 L と連結して環を形成するアルキレン基であり、更に好ましくは炭素数1~8のアルキル基、 L と連結して6員環を形成するアルキレン基であり、特に好ましくはメチル基、エチル基、 L と連結して6員環を形成するアルキレン基(トリメチレン基、3,3-ジメチルトリメチレン基)である。

【0030】 R^1 および R^2 は水素原子またはアミノ基を含まない置換基を表す。 R^1 および R^2 で表される置換基としては、例えばアルキル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメチル、エチル、*isopropyl*

propyl、*tert-butyl*、*n-octyl*、*n-decyl*、*n-hexadecyl*、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、ナフチル等が挙げられる。)、アルコキシ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、特に好ましくは炭素数1~8であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ等が挙げられる。)、アリールオキシ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフチルオキシ等が挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイル等が挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニル等が挙げられる。)、アリールオキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、特に好ましくは炭素数7~10であり、例えばフェニルオキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシ等が挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメチルチオ、エチルチオ等が挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6~20、より好ましくは炭素数6~16、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニルチオ等が挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシル等が挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニル等が挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1

～30、より好ましくは炭素数1～12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子を含むものであり具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、アゼピニル等が挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3～40、より好ましくは炭素数3～30、特に好ましくは炭素数3～24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリル等が挙げられる。)等が挙げられる。これらの置換基は更にアミノ基を含まない置換基により置換されても良い。また置換基が二つ以上ある場合は、同一でも異なっているても良い。また、可能な場合には互いに連結して環を形成していても良い。

【0031】 R^1 、 R^2 として好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アリール基であり、更に好ましくはアリール基である。

【0032】 R^1 、 R^2 で表される脂肪族炭化水素基として好ましくは、アルキル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、*iso*-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。)、アルケニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。)であり、より好ましくはアルキル基である。

【0033】 R^1 、 R^2 で表されるアリール基は、無置換の単環または縮環のアリール基(好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、特に好ましくは炭素数6～12のアリール基)であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、*p*-メトキシフェニル、*m*-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニ

ル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。

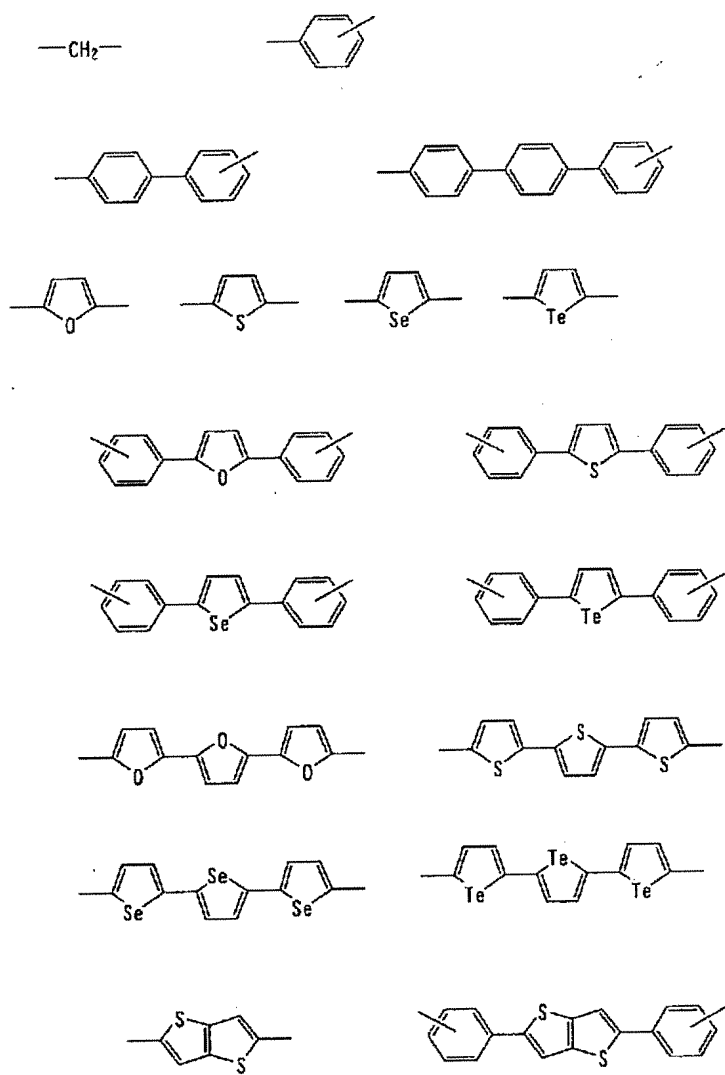
【0034】 R^1 、 R^2 で表される芳香族ヘテロ環基は、単環または縮環のヘテロ環基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数2～10のヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。 R で表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフエン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ピリジン、ピラジン、ピリダジン、ピリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントリリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフエン、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフエン、ピリジン、キノリンである。

【0035】 L は連結基を表す。 L で表される連結基として好ましくは、単結合、C、N、O、S、Se、Te、Si、Geなどで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環(好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくはアジン、アゾール、チオフエン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。)およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、さらに好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびNとこれらの組み合わせから成る基である。

【0036】 L で表される連結基の具体例としては、単結合の他、例えば以下の構造が列挙できる。

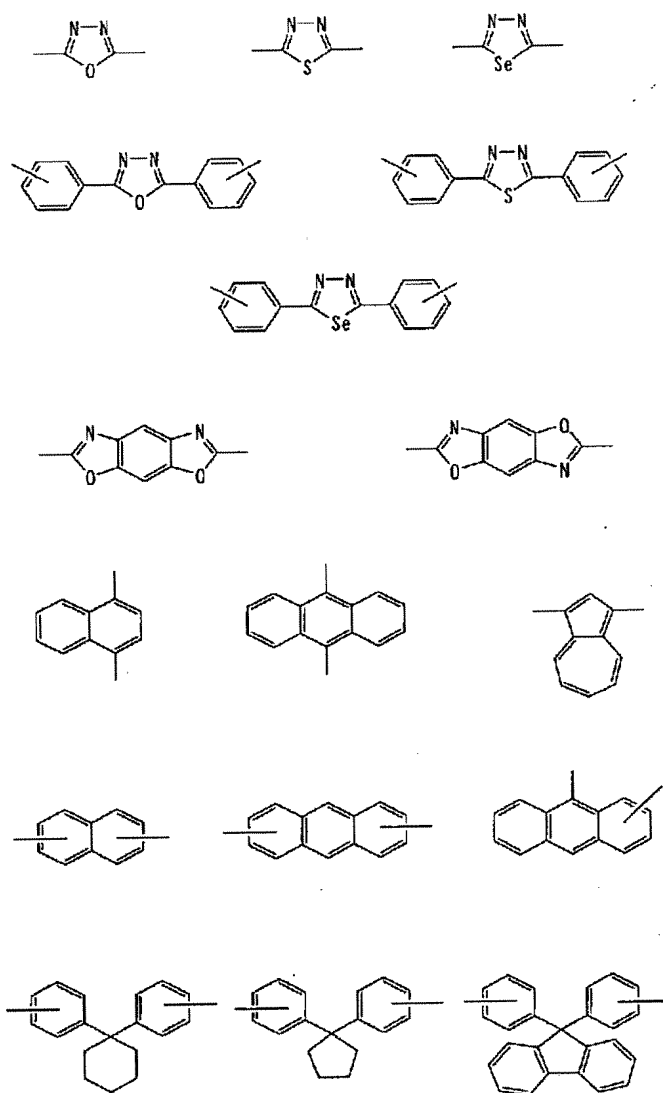
【0037】

【化13】



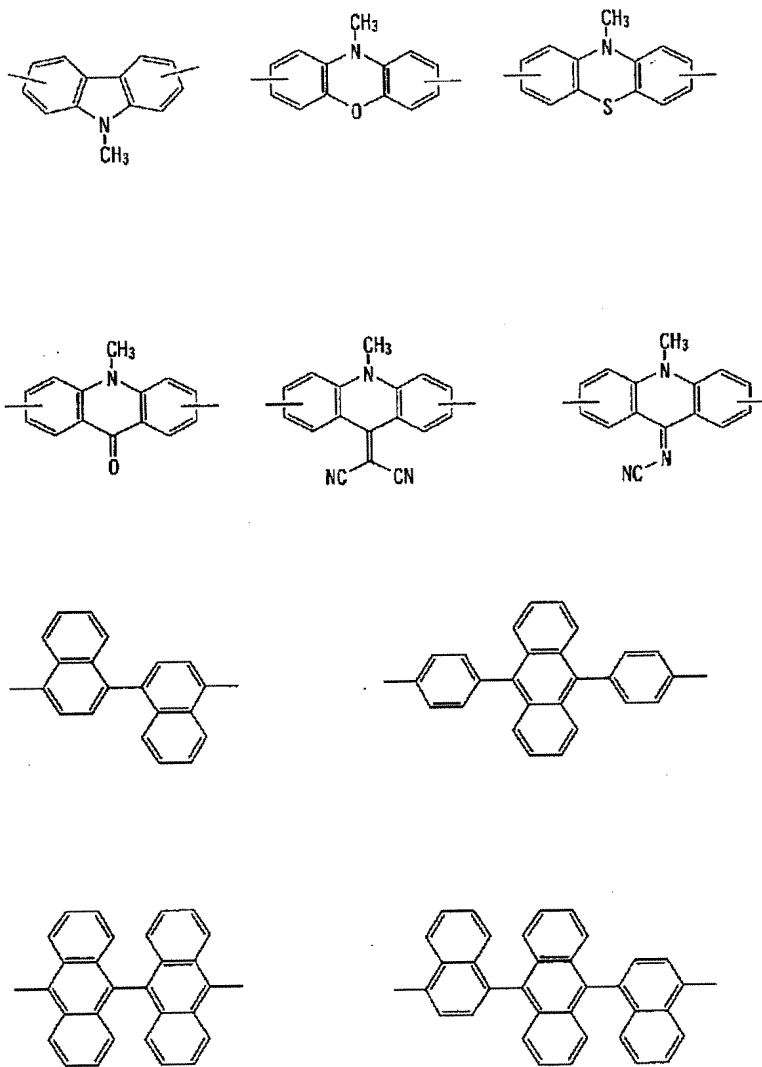
【0038】

【化14】



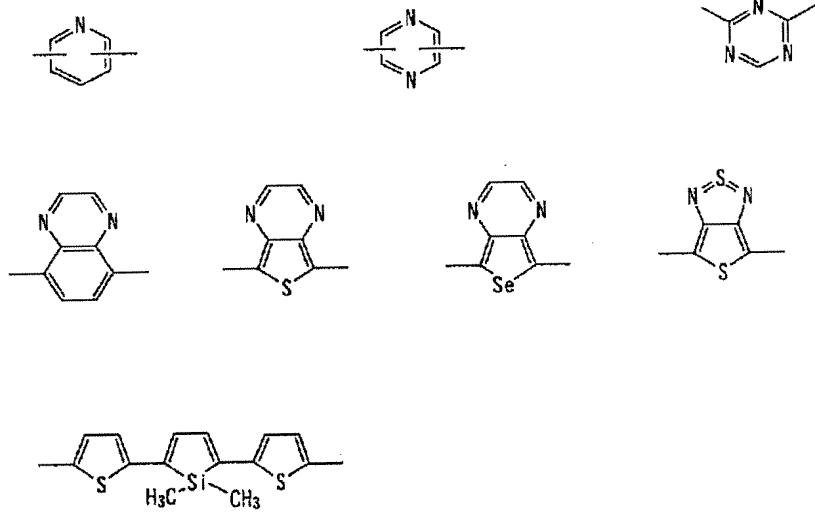
【0039】

【化15】



【0040】

【化16】



【0041】Lで表される連結基は置換基を有していて

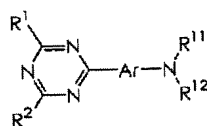
もよく、置換基としては例えば R^{11} 、 R^{12} で表される基

の置換基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0042】一般式 (I) で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式 (II) で表される化合物である。

【0043】

【化17】

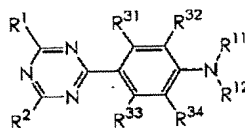


【0044】式中、R¹¹、R¹²、R¹およびR²はそれぞれ一般式 (I) におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。Arはアリーレンまたは二価の芳香族ヘテロ環基を表す。Arで表されるアリーレンまたは二価の芳香族ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては例えばR¹¹、R¹²で表される基の置換基として挙げたものが適用できる。Arの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

【0045】一般式 (I) で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (III) で表される化合物である。

【0046】

【化18】



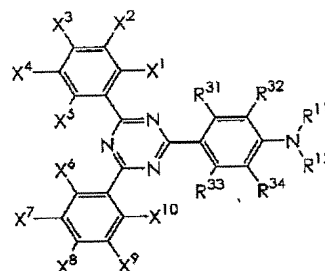
【0047】式中、R¹¹、R¹²、R¹およびR²はそれぞれ一般式 (I) におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。R³¹、R³²、R³³およびR³⁴は水素原子または置換基を表し、置換基としては一般式 (I) におけるR¹¹、R¹²の置換基として挙げたものが適用でき、R³¹、R³²、R³³およびR³⁴として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル

基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくは水素原子、アルキル基である。

【0048】一般式 (I) で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式 (IV) で表される化合物である。

【0049】

【化19】



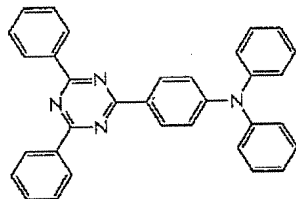
【0050】式中、R¹¹、R¹²、R³¹、R³²、R³³およびR³⁴はそれぞれ一般式 (I) におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。X¹～X¹⁰は水素原子または置換基を表し、置換基としては一般式 (I) におけるR¹、R²の置換基として挙げたものが適用でき、X¹～X¹⁰として好ましくは、水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくは水素原子、アルキル基である。

【0051】一般式 (I) ～ (IV) で表される化合物は低分子であっても良いし、残基がポリマー主鎖に接続された高分子量化合物 (好ましくは質量平均分子量1000～5000000、より好ましくは5000～2000000) もしくは、本発明の化合物を主鎖に持つ高分子量化合物 (好ましくは質量平均分子量1000～5000000、より好ましくは5000～2000000) であっても良い。高分子量化合物の場合はホモポリマーであっても良いし、他のポリマーとの共重合体であっても良く、共重合体である場合はランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であっても良い。本発明で用いる化合物とし

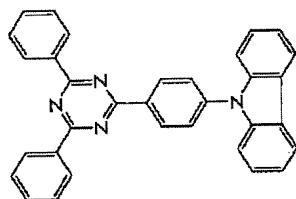
ては、好ましくは低分子量化合物である。

【0052】以下に本発明の一般式(Ⅰ)で表される化合物の具体例を示すが、本発明はこれらに限定されるも

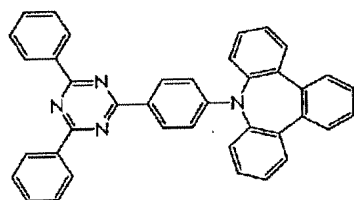
例示化合物 1.



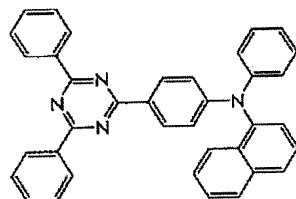
例示化合物 2.



例示化合物 3.



例示化合物 4.

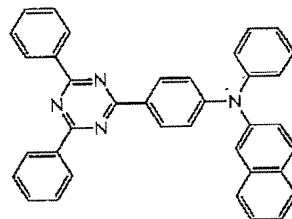


のではない。

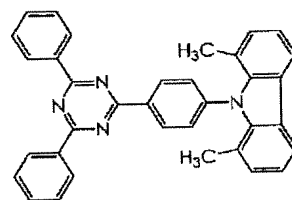
【0053】

【化20】

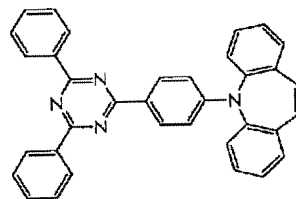
例示化合物 5.



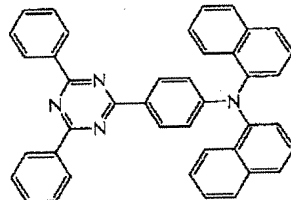
例示化合物 6.



例示化合物 7.



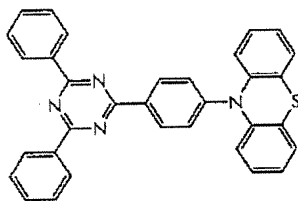
例示化合物 8.



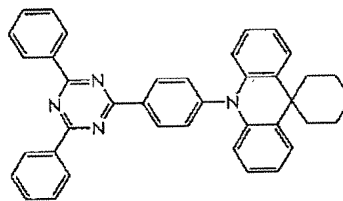
【0054】

【化21】

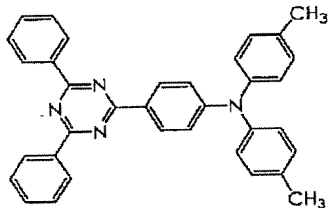
例示化合物 9.



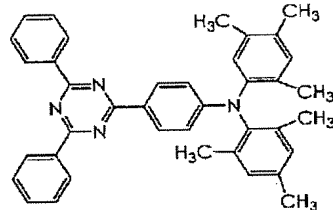
例示化合物 13.



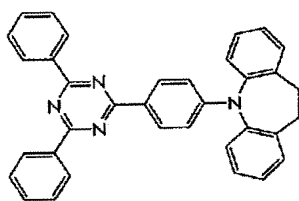
例示化合物 10.



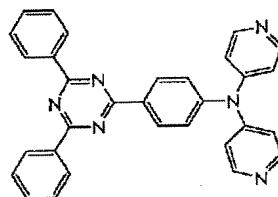
例示化合物 14.



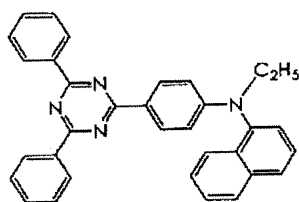
例示化合物 11.



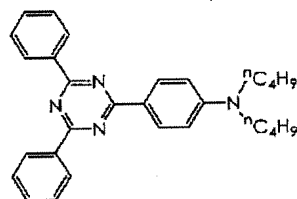
例示化合物 15.



例示化合物 12.



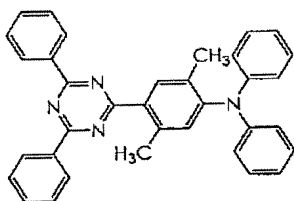
例示化合物 16.



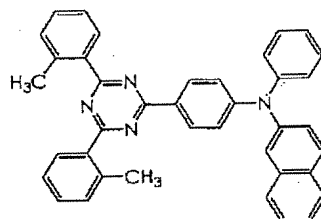
【0055】

【化22】

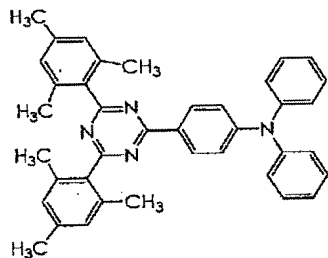
例示化合物 17.



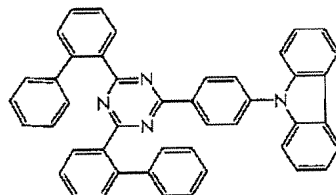
例示化合物 21.



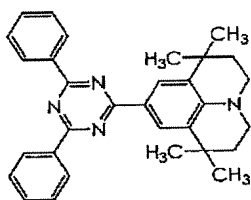
例示化合物 18.



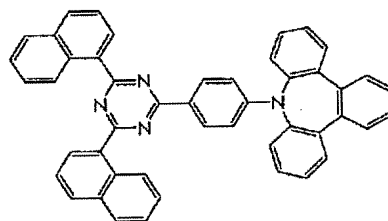
例示化合物 22.



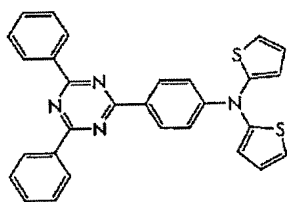
例示化合物 19.



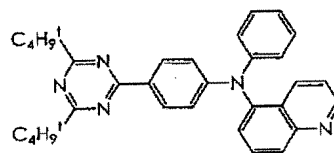
例示化合物 23.



例示化合物 20.



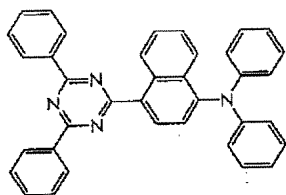
例示化合物 24.



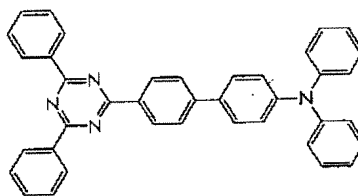
【0056】

【化23】

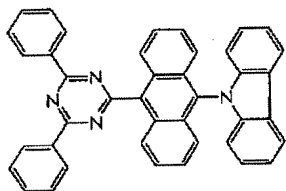
예시化合物 25.



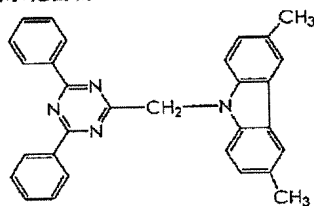
예시化合物 29.



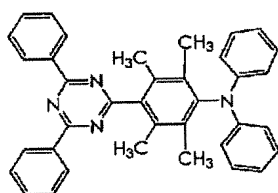
예시化合物 26.



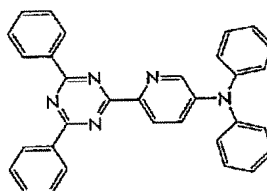
예시化合物 30.



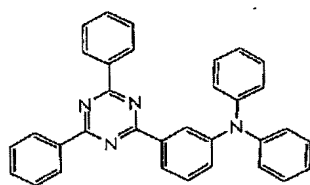
예시化合物 27.



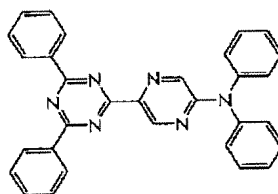
예시化合物 31.



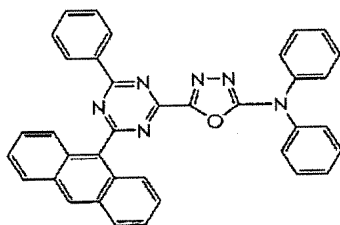
예시化合物 28.



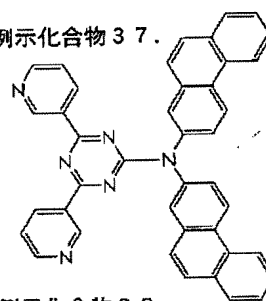
예시化合物 32.



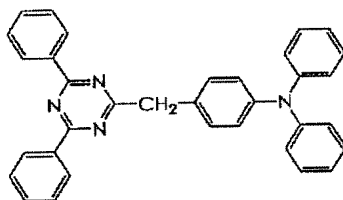
例示化合物 33.



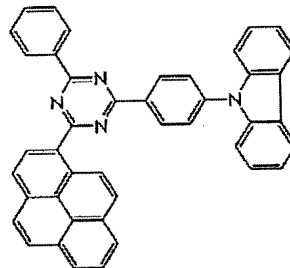
例示化合物 37.



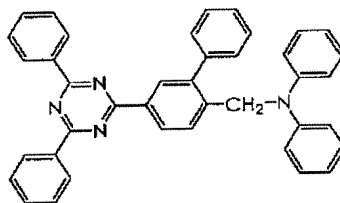
例示化合物 34.



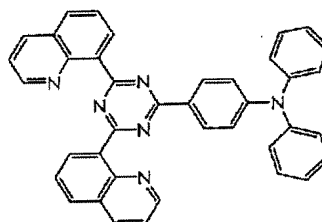
例示化合物 38.



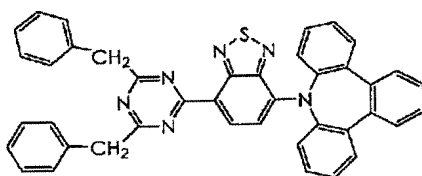
例示化合物 35.



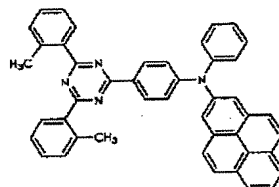
例示化合物 39.



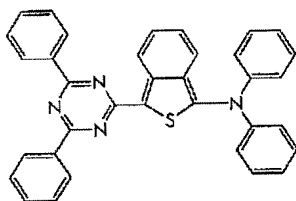
例示化合物 36.



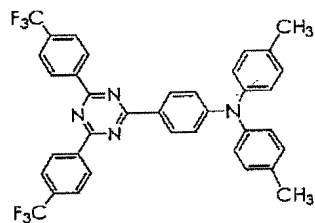
例示化合物 40.



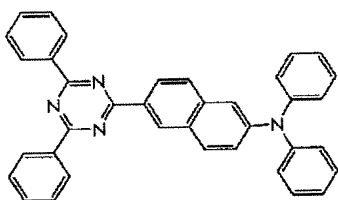
例示化合物 4 1 .



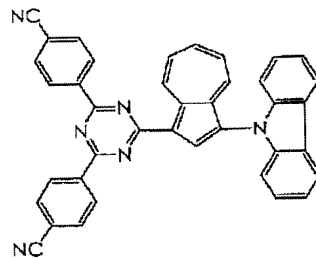
例示化合物 4 5 .



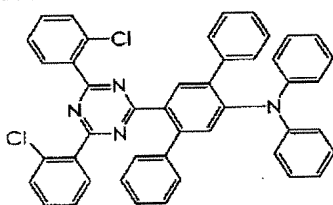
例示化合物 4 2 .



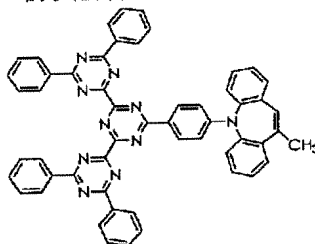
例示化合物 4 6 .



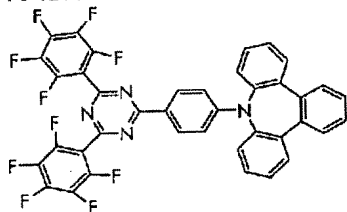
例示化合物 4 3 .



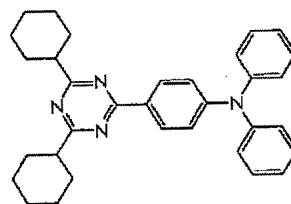
例示化合物 4 7 .



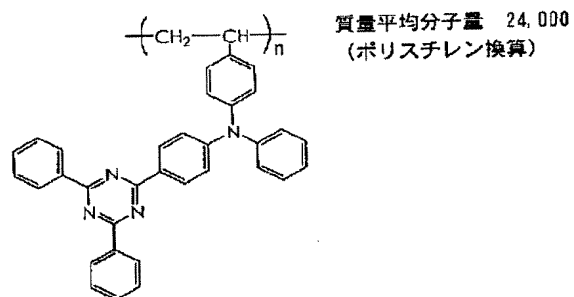
例示化合物 4 4 .



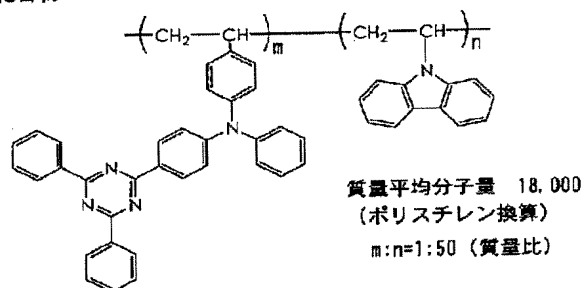
例示化合物 4 8 .



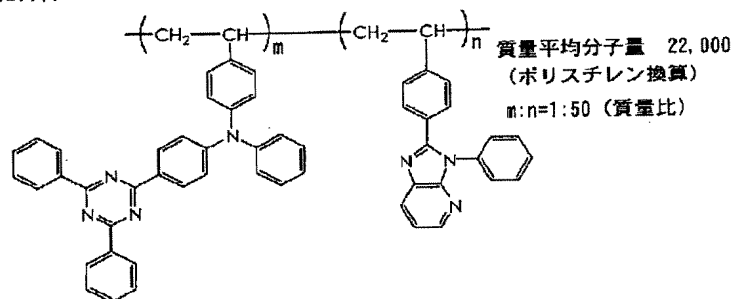
例示化合物 49.



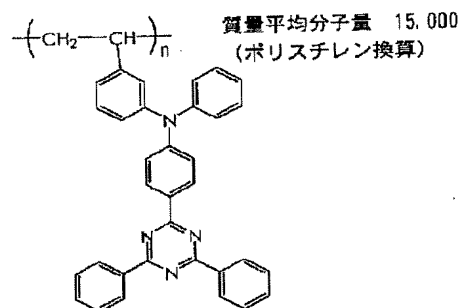
例示化合物 50.



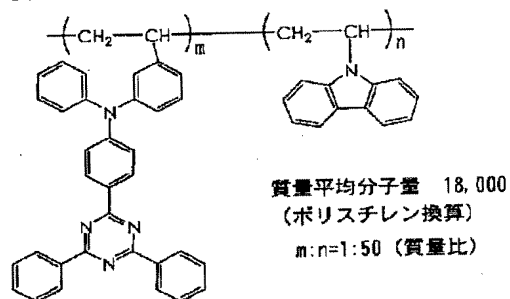
例示化合物 51.



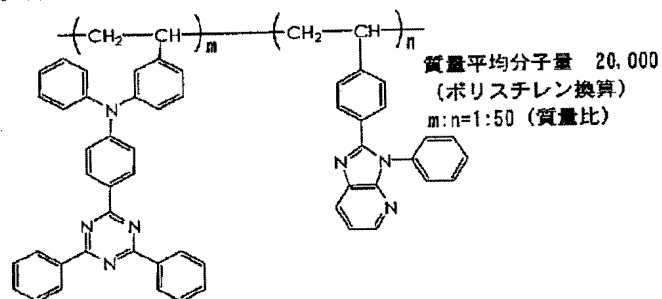
例示化合物 5 2 .



例示化合物 5 3 .



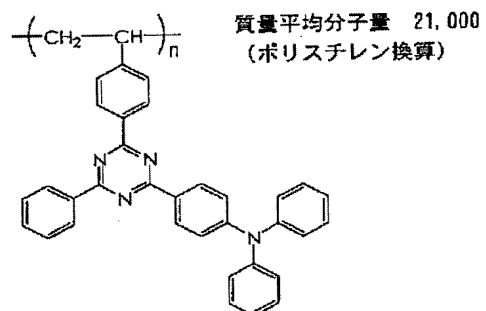
例示化合物 5 4 .



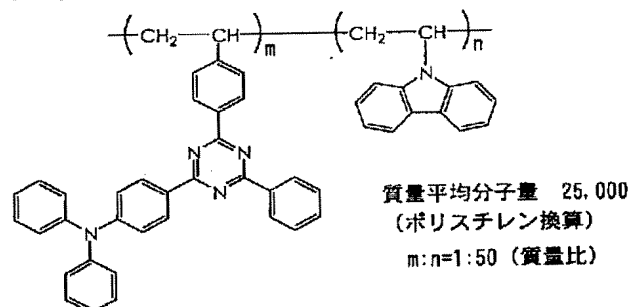
【0061】

【化28】

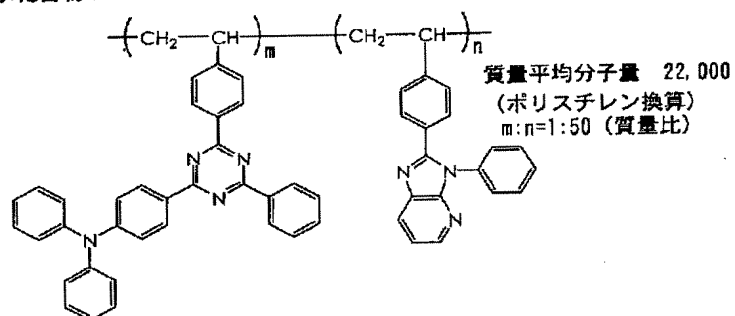
例示化合物 5 5.



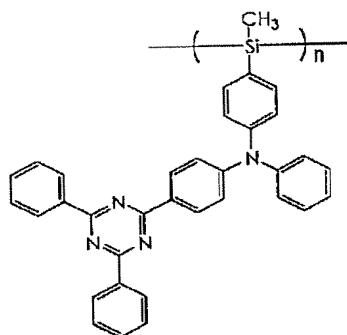
例示化合物 5 6.



例示化合物 5 7.

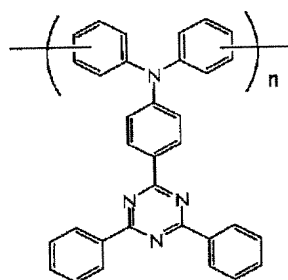


例示化合物 58.



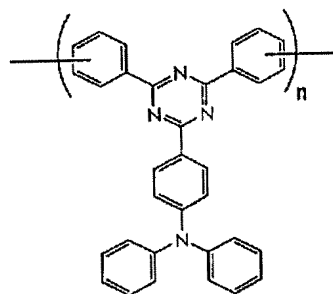
質量平均分子量 5,000
(ポリスチレン換算)

例示化合物 59.



質量平均分子量 10,000
(ポリスチレン換算)

例示化合物 60.



質量平均分子量 8,000
(ポリスチレン換算)

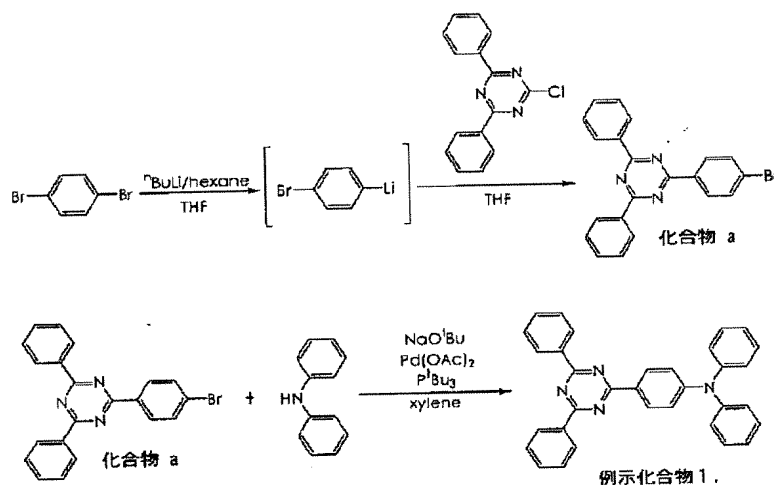
【0063】上記化合物はその互変異性体であっても良い。

【0064】次に本発明の一般式(1)に示される化合物の合成法について具体例を示して説明する。

合成例1. 例示化合物1の合成

【0065】

【化30】



【0066】原料となる2-クロロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジンは日本特許第3067878号に記載の既知の合成法で合成した。

1-1. 化合物aの合成

1,4-ジブロモベンゼン2.64g(11.21ミリモル)を乾燥テトラヒドロフラン30ミリリットルに溶解させ、 -70°C に冷却した。この溶液に、*n*-ブチリチウムのヘキサン溶液(1.6M)7.4ミリリットル(11.77ミリモル)をゆっくりと滴下し、 -70°C で30分間攪拌した。次に、この混合物に対し、2-クロロ-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン3.0g(11.21ミリモル)のテトラヒドロフラン溶液を -70°C で滴下し、 -70°C で30分間攪拌した後、徐々に室温まで昇温し、さらに1.5時間攪拌した。得られた混合物を酢酸エチルで抽出し、有機相を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を留去し、シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒/クロロホルム:ヘキサン=10:90)にて精製することにより化合物aを1.48

g(3.81ミリモル)得た。収率34%。

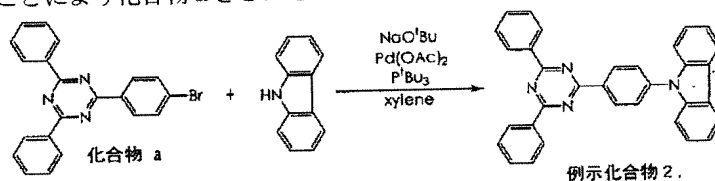
【0067】1-2. 例示化合物1の合成

ジフェニルアミン130mg(0.77ミリモル)をキシレン20ミリリットルに溶解させ、ナトリウムブトキシド78mg(0.017モル)、触媒量の酢酸パラジウム(II)とトリ-*n*-ブチルホスフィンを加えて攪拌した。次に化合物a300mg(0.77ミリモル)を加え、4時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾過により取り除き、濾液を酢酸エチルから抽出した。有機相を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンより再結晶し、例示化合物1を1.5g(0.40ミリモル)得た。収率52%。融点: 179°C

【0068】合成例2. 例示化合物2の合成

【0069】

【化31】



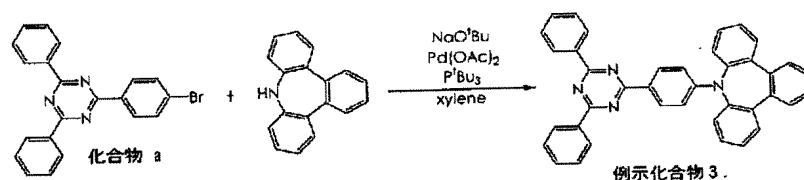
【0070】カルバゾール258mg(1.55ミリモル)をキシレン30ミリリットルに溶解させ、ナトリウムブトキシド186mg(1.94ミリモル)、および触媒量の酢酸パラジウム(II)とトリ-*n*-ブチルホスフィンを加えて攪拌した。次に化合物a500mg(1.29ミリモル)を加え、1.5時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物を濾過により取り除き、濾液を酢酸エチルから抽出した。有機相を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで

乾燥した後、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンより再結晶し、例示化合物2を373mg(0.79ミリモル)得た。収率61%。融点: 263°C

【0071】合成例3. 例示化合物3の合成

【0072】

【化32】



【0073】トリベンゾアゼピン138mg (0.567ミリモル) をキシレン15ミリリットルに溶解させ、ナトリウムブトキシド55mg (0.569ミリモル) および触媒量の酢酸パラジウム(II)とトリートブチルホスフィンを加えて攪拌した。次に化合物a 200mg (0.515ミリモル) を加え、4時間加熱還流した。反応液を室温まで冷却した後、不溶物をろ過により取り除き、ろ液を酢酸エチルから抽出した。有機相を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、溶媒を減圧留去した。シリカゲルカラムクロマトグラフィ(展開溶媒: クロロホルム)にて精製した後、クロロホルム/ヘキサンより再結晶し、例示化合物3を128mg (0.232ミリモル) 得た。収率45%。融点: 298℃

【0074】本発明の化合物を含有する発光素子に関して説明する。本発明の化合物を含有する発光素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、特性面、製造面を考えると抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

【0075】本発明の化合物を発光素子用材料として用いた場合、ホール注入・輸送層、電子注入・輸送層、発光層のいずれに用いても良いが、発光層として用いることが好ましい。

【0076】本発明の発光素子は、陽極、陰極の一对の電極間に発光層、もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであっても良い。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

【0077】陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ(ITO)などの導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物、または積層物、ヨウ化銅、留化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であ

り、特に、生産性、高伝導性、透明性などの観点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm~1μmであり、更に好ましくは100nm~500nmである。

【0078】陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートをしたものを使用することが好ましい。基板の厚みは機械的強度を保つのに十分な厚みであれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2mm以上、好ましくは0.7mm以上のものを用いる。陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法(ゾルーゲル法など)、ITO分散物の塗布などの方法で膜形成される。陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げ、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

【0079】陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの陰極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性などを考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができ、具体例としてはアルカリ金属(例えばLi、Na、K、Csなど)またはそのフッ化物、アルカリ土類金属(例えばMg、Caなど)またはそのフッ化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金、またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金、またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウムなどの希土類金属が挙げられ、好ましくは仕事関数が4eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金、またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金、またはそれらの混合金属などである。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10nm~5μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50nm~1μmであり、更に好ましくは100nm~1μmである。陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用

いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させても良い。陽極および陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 Ω/\square 以下が好ましい。

【0080】発光層の材料は、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであればなんでも良い。発光層に用いる化合物としては本発明の化合物の他、具体的に下記に挙げる化合物等を用いることができる。

【0081】(a) ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタリイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、シクロペンタジエン、スチリルアミン、芳香族ジメチリジン化合物、ピレン、およびこれらの誘導体など。

(b) 8-キノリノールおよびその誘導体の金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体など。

(c) ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフルオレン、ポリフェニレンビニレン、およびこれらの置換されたポリマー化合物など

(d) オルトメタル化金属錯体またはポルフィリン金属錯体など。

【0082】発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm \sim 5 μ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm \sim 1 μ mであり、更に好ましくは10 nm \sim 500 nmである。

【0083】発光層の形成方法は特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップ法など）、LB法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着法、コーティング法である。

【0084】正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良い。その具体例としては、カルバゾール、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、イミダゾール、ポリアリーールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、およびこれら

の誘導体、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、芳香族ジメチリジン系化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ(N-ビニルカルバゾール)誘導体、アニリン系共重合体、チオフェン化合物、ポリチオフェン、置換および無置換ポリチオフェン-ポリスチレンスルホン酸混合物等の導電性高分子オリゴマー等が挙げられ、またこれらの混合物であってもよい。

【0085】正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は材質により特に限定されるものではないが、通常1 nm \sim 5 μ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm \sim 1 μ mであり、更に好ましくは10 nm \sim 500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であっても良いし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であっても良い。

【0086】正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記正孔注入材料、正孔輸送材料を溶媒に溶解、または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルロース、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

【0087】電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入され得た正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良い。具体例としては、ピリジン、ピラジン、キノリン、キノキサリン、フェナンスロリン、トリアジン、チエノピラジン、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾトリアゾール、フェナントリジン、トリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルビジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、フタロシアニン、およびこれらの誘導体、ナフタレンピリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする各種金属錯体等が挙げられる。混合物またはポリマーとして使用してもよい。

【0088】電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm \sim 5 μ mの範囲のも

のが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であっても良いし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であっても良い。

【0089】電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記電子注入材料、電子輸送材料を溶媒に溶解、または分散させてコーティングする方法（スピコート法、キャスト法、ディップコート法など）が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入・輸送層の場合に例示したものが適用できる。

【0090】保護層の材料としては水分や酸素などの素子劣化を促進するものが素子内に入る事を抑止する機能を有しているものであれば良い。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Niなどの金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂などの金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂などの金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質などが挙げられる。

【0091】保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エビタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法を適用できる。

【0092】

【実施例】以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれにより限定されるものではない。

【0093】比較例1

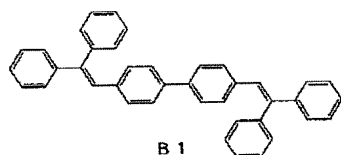
25 mm×25 mm×0.7 mmのガラス基板上にITOを150 nmの厚さで製膜したもの（東京三容真空（株）製）を透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、NPD（N，N'-ビス（1-ナフチル）-N，N'-ジフェニルベンジジン）を約40 nm、青色発光材料B1を約20 nmおよび電子輸送材料ETM1を約40 nmの膜厚として、順に10⁻³～10⁻⁴ Paの真空中で、約0.4 nm/秒の蒸着速度で基板温度室温の条件下蒸着した。次いで有機薄膜上にパターンニングしたマスク（発光面積が5 mm×5 mmとなるマスク）を設置し、蒸着装置内でマグネシウム：銀＝10：1を250 nm共蒸着した後、銀300 nmを蒸着し、素子を作成した。東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流定電圧をEL素子に印加し、発光させてその輝度をトプコン社の輝度計BM-8、発光波長とCIE色度座標のそれぞれを浜松ホトニクス社製スペクトルアナライザーPMA-11により用いて測定した。その結果、発光波長が457 nm、半値幅が93 nm、CIE色度座標が（0.19，0.31）の青緑色発光が得られ、14 Vで1950 cd/m²の輝度が得られた。2週間後の素子は白濁し、発光しなかった。

【0094】比較例2

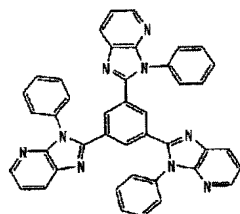
比較例1と同様に、ITO基板上にNPDを約40 nm、青色発光材料B2を約20 nmおよび電子輸送材料ETM1を約40 nmの膜厚に蒸着し、陰極を蒸着して素子を作製した。比較例1と同様に素子評価を行った結果、発光波長が487 nm、半値幅が102 nm、CIE色度座標が（0.24，0.29）の青色発光が得られ、12 Vで1410 cd/m²の輝度が得られた。2週間後も素子は白濁せず、同様の発光が得られた。

【0095】

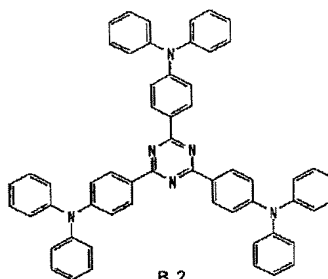
【化33】



B 1



ETM 1



B 2

特開平 11-354284 に記載の化合物

【0096】実施例1

比較例1と同様に、ITO基板上にNPDを約40nm、例示化合物1を約20nmおよび電子輸送材料ETM1を約40nmの膜厚に蒸着し、陰極を蒸着して素子を作製した。比較例1と同様に素子評価を行った結果、発光波長が477nm、半値幅が65nm、CIE色度座標が(0.14, 0.24)の青色発光が得られ、12Vで7790cd/m²の輝度が得られた。2週間後も素子は白濁せず、同様の青色発光が得られた。

【0097】実施例2

比較例1と同様に、ITO基板上にNPDを約40nm、例示化合物2を約20nmおよび電子輸送材料ETM1を約40nmの膜厚に蒸着し、陰極を蒸着して素子を作製した。比較例1と同様に素子評価を行った結果、発光波長が434nm、半値幅が71nm、CIE色度座標が(0.17, 0.16)の青色発光が得られ、13Vで2200cd/m²の輝度が得られた。2週間後も素子は白濁せず、同様の青色発光が得られた。

【0098】実施例3

比較例1と同様に、ITO基板上にNPD約40nm、例示化合物3約20nmおよび電子輸送材料ETM1を約40nmの膜厚に蒸着し、陰極を蒸着して素子を作製した。比較例1と同様に素子評価を行った結果、発光波長が462nm、半値幅が85nm、CIE色度座標が(0.16, 0.18)の青色発光が得られ、14Vで2920cd/m²の輝度が得られた。2週間後も素子は白濁せず、同様の青色発光が得られた。

【0099】実施例4

比較例2と実施例1～3の素子において、輝度を一定にしたときの性能を評価するために、1000cd/m²を得るために必要な印加電圧を比較したところ、表1のような結果が得られた。

【0100】

【表1】

	1000cd/m ² 時の 印加電圧(V)
実施例1	8.7
実施例2	10.1
実施例3	8.8
比較例2	16.0

【0101】表1の結果から、本発明の化合物を用いた素子では、低印加電圧で高輝度の発光が得られ、非ドーブ型であるにもかかわらず、青色領域に高輝度な発光を有すると共に、従来と比較して半値幅の非常に狭いシャープなスペクトルを有しており、かつ青色純度に優れた発光を示すことが分かった。

【0102】実施例5

比較例1と同様に洗浄処理したITO基板上に、ポリ(N-ビニルカルバゾール)を40mg、PBD(2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール)を12mg、例示化合物1を0.5mg、1,2-ジクロロエタン3mlに溶解させてスピンコートにより塗布した。生成した有機薄膜の膜厚は約120nmであった。有機薄膜上にパターンニングしたマスク(発光面積が5mm×5mmとなるマスク)を設置し、蒸着装置内でマグネシウム:銀=10:1を250nm共蒸着した後、銀300nmを蒸着して発光素子を作製した。比較例1と同様に素子評価を行った結果、発光波長が468nm、CIE色度座標が(0.16, 0.15)の青色発光が得られ、17Vで1820cd/m²の輝度が得られた。

【0103】上記の結果から、一対の電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した発光素子において、本発明の化合物の少なくとも一種をポリマー中に分散して、該有機化合物層の少なくとも一層以上に含有する発光素子では、通常発光輝度の低い塗布型

素子でも、蒸着型素子と比較して同等程度の高輝度発光が可能であり、非常に色純度の高い青色発光素子が得られることが分かった。

【 0 1 0 4 】

【 発明の効果 】 本発明により、従来と比較して色純度が特に優れ、高輝度な発光を示す非ドーパ型青色発光素子を得ることができた。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	タームコード (参考)
C 0 7 D 403/04		C 0 7 D 403/04	
403/10		403/10	
409/04		409/04	
409/14		409/14	
413/04		413/04	
417/14		417/14	
455/04		455/04	
C 0 9 K 11/06	6 4 0	C 0 9 K 11/06	6 4 0
	6 4 5		6 4 5
	6 5 0		6 5 0
	6 5 5		6 5 5
	6 8 0		6 8 0
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B

F ターム (参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB06 EB00
 FA01
 4C063 AA01 AA03 AA05 BB01 BB06
 BB09 CC43 CC58 CC64 CC67
 CC92 DD08 DD12 DD14 DD17
 DD19 DD43 EE10
 4C064 AA12 CC01 DD02 DD09 EE01
 FF01 GG03 GG11